

Rec'd PCT/PTO 27 APR 2005 #2

10/532727

PCT/JP 03/13700

日 本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE

27.10.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2 0 0 2 年 1 1 月 2 2 日

出 願 番 号
Application Number: 特 願 2 0 0 2 - 3 3 9 7 3 5
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 2 - 3 3 9 7 3 5]

出 願 人
Applicant(s): 花王株式会社

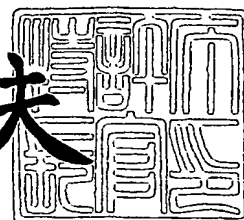
RECEIVED	
12 DEC 2003	
WIPO	PCT

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 3 年 1 1 月 2 8 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特 2 0 0 3 - 3 0 9 8 4 3 3

【書類名】 特許願
【整理番号】 P05341411
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 A23F 3/14
A23L 1/30
A23L 2/52

【発明者】

【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2 - 1 - 3 花王株式会社研究所内
【氏名】 小倉 義和

【発明者】

【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2 - 1 - 3 花王株式会社研究所内
【氏名】 大石 進

【発明者】

【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2 - 1 - 3 花王株式会社研究所内
【氏名】 福田 昌弘

【発明者】

【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2 - 1 - 3 花王株式会社研究所内
【氏名】 高橋 宏和

【発明者】

【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2 - 1 - 3 花王株式会社研究所内
【氏名】 板屋 枝里

【発明者】

【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2 - 1 - 3 花王株式会社研究所内
【氏名】 小西 敦

【特許出願人】

【識別番号】 000000918
【氏名又は名称】 花王株式会社

【代理人】

【識別番号】 110000084

【氏名又は名称】 特許業務法人アルガ特許事務所

【代表者】 有賀 三幸

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 164232

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 緑茶抽出物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 (A) 非重合体カテキン類と (B) 総ポリフェノール類との含有重量比 $[(A) / (B)]$ が 0.83～0.96 である緑茶抽出物。

【請求項 2】 請求項 1 の緑茶抽出物を配合した飲料であって、飲料中の非重合体カテキン類濃度が 0.092～0.5 重量%である容器詰飲料。

【請求項 3】 緑茶、半発酵茶及び発酵茶から選ばれた茶の抽出液に、緑茶抽出物を配合したものである請求項 2 記載の容器詰飲料。

【請求項 4】 緑茶飲料である請求項 2 又は 3 記載の容器詰飲料。

【請求項 5】 さらにサイクロデキストリン 0.01～0.5 重量%を含有するものである請求項 2～4 のいずれか 1 項記載の容器詰飲料。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は総ポリフェノールに対して非重合体カテキン類を制御した緑茶抽出物とそれを用いた保存安定性が良好な容器詰飲料に関する。

【0002】

【従来の技術】

カテキン類の効果としてはコレステロール上昇抑制作用や α アミラーゼ活性阻害作用などが報告されている（例えば、特許文献 1、2 参照）。カテキン類のこのような生理効果を発現させるためには、成人一日あたり 4～5 杯のお茶を飲むことが必要であることから、より簡便に大量のカテキン類を摂取するために、飲料にカテキン類を高濃度配合する技術が望まれていた。この方法の一つとして、緑茶抽出液の濃縮物（例えば、特許文献 3～5 参照）などを利用して、カテキン類を飲料に溶解状態で添加する方法がある。

【0003】

しかしながら、緑茶抽出液の濃縮物を用いると、それに含まれる非重合体カテキン類以外の成分によって、非重合カテキン類を高濃度に含有する飲料の保存時

の色調が変化してしまうという問題があった。

【0004】

【特許文献1】

特開昭60-156614号公報

【特許文献2】

特開平3-133928号公報

【特許文献3】

特開昭59-219384号公報

【特許文献4】

特開平4-20589号公報

【特許文献5】

特開昭61-130285号公報

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、非重合体カテキン類に対する総ポリフェノール類の比率を調整した緑茶抽出物を用いて、高濃度のカテキン類を含有し、かつ長期保存後においても色調の安定した容器詰飲料を提供することにある。

【0006】

【課題を解決するための手段】

本発明者は、高濃度のカテキン類を含有する容器詰飲料の色調の変化を防止すべく、種々配合を検討した結果、非重合体カテキン類に対する総ポリフェノール類の比率を調整した緑茶抽出物を使用することにより、保存後も色調の安定した飲料が得られることを見出した。

【0007】

すなわち、本発明は、(A) 非重合体カテキン類と (B) 総ポリフェノール類との含有重量比[(A) / (B)]が0.83～0.96である緑茶抽出物を提供するものである。また本発明は、当該緑茶抽出物を配合した飲料であって、飲料中の非重合体カテキン類濃度が0.092～0.5重量%である容器詰飲料を提供するものである。

【0008】

【発明の実施の形態】

本発明で非重合体カテキン類とは、カテキン、ガロカテキン、カテキンガレート及びガロカテキンガレートなどの非エピ体カテキン類とエピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートなどのエピ体カテキン類をあわせての総称である。

【0009】

本発明では、容器詰飲料における高い非重合体カテキン類濃度及び安定性を達成するために、(A) 非重合体カテキン類と (B) 総ポリフェノール類との含有重量比[(A) / (B)]が0.83～0.96である緑茶抽出物が用いられる。

ここでいう緑茶抽出物とは、茶葉から熱水もしくは水溶性有機溶媒により抽出された抽出液を濃縮したものをさらに精製したもの、あるいは抽出液を直接精製したものであって、例えば特許文献3乃至5などに詳細に例示されている方法を応用することで、非重合体カテキン類と総ポリフェノール類の比率を調整することにより得ることができる。

また市販の三井農林(株)「ポリフェノン」、伊藤園(株)「テアフラン」、太陽化学(株)「サンフェノン」などの緑茶抽出液の濃縮物を用い、これらの非重合体カテキン類と総ポリフェノール類の成分調整を行うことにより、本発明の目的に適う緑茶抽出物を得ることもできる。

【0010】

緑茶抽出物の濃縮物の精製手段としては、例えば緑茶抽出液の濃縮物を水又は水と有機溶媒の混合物に懸濁し、これに有機溶媒を添加することにより生じた沈殿を除去し、次いで溶媒を留去する方法；緑茶抽出液の濃縮物を有機溶媒に溶解し、これに水又は水と有機溶媒の混合物を添加することにより生じた沈殿を除去し、次いで溶媒を留去する方法；等が挙げられる。

【0011】

ここでいう緑茶抽出物の形態としては、固体、水溶液、スラリー状など種々のものが挙げられる。

【0012】

本発明に用いる緑茶抽出物中の非重合体カテキン類（A）と総ポリフェノール類（B）の含有重量比 $[(A)/(B)]$ は、0.83～0.96であり、好ましくは0.83～0.94、更に好ましくは0.84～0.93、特に好ましくは0.84～0.92である。

緑茶抽出物中の総ポリフェノール類に対する非重合体カテキン類の比率が低すぎると、飲料に非重合体カテキン類以外の成分などが多く含まれてしまい、飲料保存時の色調の安定性を害し好ましくない。また緑茶抽出物中の総ポリフェノール類に対する非重合体カテキン類の比率が高すぎると、飲料の風味バランスが変化してしまい、好ましくない。

【0013】

ここで総ポリフェノール類とは、酒石酸鉄法により、標準液として没食子酸エチルを用い、没食子酸の換算量として求める方法によって定量される成分のことをいう。（参考文献：「緑茶ポリフェノール」飲食料品用機能性素材有効利用技術シリーズNO. 10）。一般的に非重合体カテキン類やこれの重合物などが本測定方法により捕捉される。

【0014】

本発明に使用する緑茶としては、Camellia属、例えばC. sinensis、C. assamica、やぶきた種、又はそれらの雑種から得られる茶葉から製茶された茶葉が挙げられる。当該製茶された茶葉には、煎茶、番茶、玉露、てん茶、釜炒り茶などの緑茶類がある。

【0015】

本発明で用いる緑茶抽出物中の非重合体カテキン類の濃度は、30～50重量%、好ましくは30～45重量%、更に好ましくは30～40重量%、特に好ましくは35～40重量%がよい。

ここでいう非重合体カテキン類の濃度は、カテキン、ガロカテキン、カテキンガレート、ガロカテキンガレート、エピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートの合計8種の合計量に基づいて定義される。

緑茶抽出物中の非重合体カテキン類の濃度が、30重量%未満の場合、飲料に

配合すべき緑茶抽出物自体の配合量が多くなる。緑茶抽出物中の非重合体カテキン類の濃度が、50重量%を超える場合、緑茶抽出物に存在する総ポリフェノール以外の遊離アミノ酸などの風味をよくする働きを持つ微量成分などを排除してしまう傾向にある。

【0016】

本発明で用いる緑茶抽出物中の非重合体カテキン類はエピガロカテキングレート、ガロカテキングレート、エピガロカテキン、ガロカテキンからなるガロ体と、エピカテキングレート、カテキングレート、エピカテキン、カテキンからなる非ガロ体の比率が、天然の緑茶葉の組成を維持している方が好ましい。したがって上記4種のガロ体総量は常に上記4種の非ガロ体総量を上回っているような精製条件で行うべきである。

【0017】

また、本発明で用いる緑茶抽出物中のカテキングレート、エピカテキングレート、ガロカテキングレート及びエピガロカテキングレートからなるガレート体の全非重合体カテキン類中での割合が45重量%以上の方が、非重合体カテキン類の生理効果の有効性上好ましい。

【0018】

本発明で用いる緑茶抽出物中の総ポリフェノール類（B）の濃度は、35～60重量%含有し、好ましくは35～55重量%、更に好ましくは40～55重量%がよい。

緑茶抽出物中の総ポリフェノール類の濃度が、60重量%を超える場合、緑茶抽出物中に含まれる他の呈味成分の含有量が少なくなってしまう、緑茶抽出物の風味上のバランスが崩れることがある。緑茶抽出物中の総ポリフェノール類の濃度が、35重量%未満の場合、有効成分である非重合体カテキン類の濃度が下がってしまうことになり、緑茶抽出物の飲料への配合量が多くなる。

【0019】

本発明の容器詰飲料は、前記特定の緑茶抽出物を配合した飲料であり、配合対象としては緑茶、半発酵茶及び発酵茶から選ばれた茶の抽出液；及び非茶系飲料が挙げられる。このうち、茶の抽出液に前記緑茶抽出物を配合した飲料が好まし

く、緑茶の抽出液に前記緑茶抽出物を配合した緑茶飲料とするのが特に好ましい。半発酵茶としては烏龍茶が挙げられ、発酵茶としては紅茶が挙げられる。また非茶系飲料としては例えばソフトドリンクである炭酸飲料、果実エキス入り飲料、野菜エキス入りジュース、ニアウォーター、スポーツ飲料、ダイエット飲料などが挙げられる。

【0020】

本発明の容器詰飲料中には、非重合体であって水に溶解状態にある(A)非重合体カテキン類を、0.092~0.5重量%含有するが、好ましくは0.1~0.4重量%、更に好ましくは0.11~0.3重量%、特に好ましくは0.12~0.3重量%含有する。非重合体カテキン類含量がこの範囲にあると、多量の非重合カテキン類を容易に摂取しやすく、強烈な苦味、渋味、強い収斂性が生じない。当該非重合体カテキン類の濃度は、緑茶抽出物の配合量によって調整することができる。

【0021】

本発明の容器詰飲料は、苦味抑制剤を配合すると飲用しやすくなり好ましい。用いる苦味抑制剤は特に限定はないが、サイクロデキストリンが好ましい。サイクロデキストリンとしては、 α -、 β -、 γ -サイクロデキストリン及び分岐 α -、 β -、 γ -サイクロデキストリンが使用できる。サイクロデキストリンは飲料中に0.01~0.5重量%、好ましくは0.01~0.3重量%含有するのがよい。

【0022】

飲料のpHは、25℃で2~7、好ましくは3~7、より好ましくは5~7とするのが非重合カテキン類の化学的安定性の点で好ましい。

【0023】

本発明の容器詰飲料には、茶由来の成分にあわせて、処方上添加して良い成分として、酸化防止剤、香料、各種エステル類、有機酸類、有機酸塩類、無機酸類、無機酸塩類、無機塩類、色素類、乳化剤、保存料、調味料、甘味料、酸味料、果汁エキス類、野菜エキス類、花蜜エキス類、pH調整剤、品質安定剤などの添加剤を単独、あるいは併用して配合しても良い。

【0024】

例えば甘味料としては、砂糖、ぶどう糖、果糖、異性化液糖、グリチルリチン、ステビア、アスパラテーム、フラクトオリゴ糖、ガラクトオリゴ糖などが挙げられる。酸味料としては、天然成分から抽出した果汁類のほか、クエン酸、酒石酸、リンゴ酸、乳酸、フマル酸、リン酸が挙げられる。飲料中に0.01~0.5重量%、好ましくは0.01~0.3重量%含有するのがよい。

無機酸類、無機酸塩類としてはリン酸、リン酸二ナトリウム、メタリン酸ナトリウム、ポリリン酸ナトリウムなどが挙げられる。飲料中に0.01~0.5重量%、好ましくは0.01~0.3重量%含有するのがよい。

【0025】

本発明の容器詰飲料に使用される容器は、一般の飲料と同様にポリエチレンテレフタレートを主成分とする成形容器（いわゆるPETボトル）、金属缶、金属箔やプラスチックフィルムと複合された紙容器、瓶などの通常の形態で提供することができる。ここでいう容器詰飲料とは希釈せずに飲用できるものをいう。

【0026】

また本発明の容器詰飲料は、例えば、金属缶のように容器に充填後、加熱殺菌できる場合にあっては食品衛生法に定められた殺菌条件で製造される。PETボトル、紙容器のようにレトルト殺菌できないものについては、あらかじめ上記と同等の殺菌条件、例えばプレート式熱交換器などで高温短時間殺菌後、一定の温度迄冷却して容器に充填する等の方法が採用される。また無菌下で、充填された容器に別の成分を配合して充填してもよい。更に、酸性下で加熱殺菌後、無菌下でpHを中性に戻すことや、中性下で加熱殺菌後、無菌下でpHを酸性に戻すなどの操作も可能である。

【0027】

【実施例】

カテキン類の測定

フィルター（0.8 μ m）でろ過し、次いで蒸留水で希釈した容器詰めされた飲料を、島津製作所製、高速液体クロマトグラフ（型式SCL-10AVP）を用い、オクタデシル基導入液体クロマトグラフ用パックドカラム L-カラムT

M O D S (4.6mm×250mm:財団法人 化学物質評価研究機構製)を装着し、カラム温度35℃でグラジエント法により行った。移動相A液は酢酸を0.1mol/L含有の蒸留水溶液、B液は酢酸を0.1mol/L含有のアセトニトリル溶液とし、試料注入量は20μL、UV検出器波長は280nmの条件で行った。

【0028】

総ポリフェノール類の測定

総ポリフェノール類の測定は酒石酸鉄法により、標準液として没食子酸エチルを用い、没食子酸の換算量として求める。(参考文献:「緑茶ポリフェノール」飲食料品用機能性素材有効利用技術シリーズNO.10)。試料5mLを酒石酸鉄標準溶液5mLで発色させ、リン酸緩衝液で25mLに定溶し、540nmで吸光度を測定し、没食子酸エチルによる検量線から総ポリフェノール量を求める。

酒石酸鉄標準液の調製:硫酸第一鉄・7水和物100mg、酒石酸ナトリウム・カリウム(ロッシェル塩)500mgを蒸留水で100mLとする。

リン酸緩衝液の調製:1/15Mリン酸水素ナトリウム溶液と1/15Mリン酸二水素ナトリウム溶液を混合しpH7.5に調整する。

【0029】

実施例1～2、比較例1～2

表1に示す成分を混合して、所定の後処理を行い、容器詰飲料を製造した。

【0030】

【表 1】

		実施例		比較例	
		1	2	1	2
緑茶抽出物 (*1)	(g)	3.13			
緑茶抽出物 (*2)	(g)		3.10		
緑茶抽出液の濃縮物 (*3)	(g)			0.5	3.5
製剤中の非重合体カテキン類と総ポリフェノール類量の比率 (注)	(-)	0.85	0.91	0.81	0.81
緑茶抽出液の乾燥物 (*4)	(g)	1.0	1.0	1.0	1.0
β-サイクロデキストリン	(g)	2.8	2.8	2.8	2.8
アスコルビン酸ナトリウム	(g)	1.0	1.0	1.0	1.0
重曹	(g)	適量	適量	適量	適量
市販飲料水 (*5)	(g)	バランス	バランス	バランス	バランス
全重量	(g)	1000	1000	1000	1000
pH		6.2	6.2	6.2	6.2
後処理温度	(℃)	139	139	139	139
後処理時間	(分)	8	8	8	8
飲料中の非重合体カテキン類総量	重量%	0.152	0.148	0.05	0.151
飲料中の総ポリフェノール類総量	重量%	0.189	0.167	0.062	0.187
飲料の色調安定性 (*6)		良好	良好	良好	黒ずむ

【0031】

(*1) 緑茶抽出物

ポリフェノンHG (東京フードテクノ製) 100 gを38重量%エタノール420 gに分散させる。次に92.5%エタノール水溶液540 gを10分で滴下した。その後、攪拌しつつ30分熟成した。熟成後、2号ろ紙にて荒濾過後、0.2 μmメッシュを持つろ紙で濾過し残存していた不溶分を取り除いた。ここで

得た濾過液に水 200 mL を加え、減圧濃縮後、凍結乾燥を施した。

得られた緑茶抽出物 非重合体カテキン類含有量 38 重量%、総ポリフェノール含有量 44.7 重量%、非重合体カテキン類/総ポリフェノール類 = 0.85

(*2) 緑茶抽出物

ポリフェノンHG (東京フードテクノ製) 100 g を 99.5 重量% エタノール 630 g に分散させる。水 270 g を 10 分で滴下した。その後、攪拌しつつ 30 分熟成した。熟成後、2 号ろ紙にて荒濾過後、0.2 μ m メッシュを持つろ紙で濾過し残存していた不溶分を取り除いた。ここで得た濾過液に水 200 mL を加え、減圧濃縮後、凍結乾燥を施した。

得られた緑茶抽出物 非重合体カテキン類含有量 37 重量%、総ポリフェノール含有量 40.6 重量%、非重合体カテキン類/総ポリフェノール = 0.91

(*3) 緑茶抽出物

ポリフェノンHG (東京フードテクノ製)

非重合体カテキン類含有量 33.70 重量%、総ポリフェノール類含有量 41.6 %、非重合体カテキン類/総ポリフェノール類 = 0.81

(*4) 緑茶抽出液の凍結乾燥品

90℃ に加温した 1000 g の湯中に煎茶葉を 40 g 加え、穏やかに攪拌しながら 5 分間抽出を行った。抽出後二枚重ねの 2 号ろ紙にて濾過を行い、濾過液は速やかに室温まで冷却した。この抽出液を凍結乾燥した。

得られた緑茶抽出液の凍結乾燥品 非重合体カテキン類含有量 33 重量%、総ポリフェノール類含有量 41 重量%

(*5) 市販飲用水 表示 カルシウム含有量 7.1 mg/100 mL、マグネシウム含有量 2.4 mg/100 mL、ナトリウム含有量 4.7 mg/100 mL

(*6) 後処理済の容器詰飲料を 55℃ にて一週間放置し、その間の外観の変化を観察した。

【0032】

容器詰飲料の 55℃ 保存試験の結果、実施例 1～2 の飲料は非重合体カテキン類を高濃度で配合しているにもかかわらず、保存後に色調の変化がなく、安定であることがわかる。

これに対して比較例 1 においては非重合体カテキン類の含有量が低いために、特に問題は生じないものの、比較例 2 では経日とともに黒ずんだ外観となってしまう。

【 0 0 3 3 】

【発明の効果】

本発明の飲料は、非重合体カテキン類を高濃度含有し、かつ外観の変化を生じず市販に適している。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 高濃度のカテキン類を含有し、かつ長期保存後も色調が変化しない安定な飲料の提供。

【解決手段】 (A) 非重合体カテキン類と (B) 総ポリフェノール類との含有重量比 $[(A) / (B)]$ が $0.83 \sim 0.96$ である緑茶抽出物及びこれを配合した飲料であって、飲料中の非重合体カテキン類濃度が $0.092 \sim 0.5$ 重量%である容器詰飲料。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 2 - 3 3 9 7 3 5
受付番号	5 0 2 0 1 7 6 9 4 7 8
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0 0 9 4
作成日	平成 1 4 年 1 1 月 2 5 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】	平成14年11月22日
-------	-------------

次頁無

特願 2 0 0 2 - 3 3 9 7 3 5

出 願 人 履 歷 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 0 9 1 8]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 4 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都中央区日本橋茅場町 1 丁目 1 4 番 1 0 号

氏 名

花王株式会社